

# XP-002335133

(C) WPI / DERWENT

AN - 2001-468360 [51]

AP - JP19990342868 19991202

CPY - MITS-N

DC - A23 A32 A85 A92 P73

FS - CPI;GMPI

IC - B32B27/36 ; C08G63/183 ; C08G63/672 ; C08J5/18

MC - A05-E04E A05-E09 A12-D02

PA - (MITS-N) MITSUBISHI ENG PLASTICS KK

PN - JP2001158071 A 20010612 DW200151 B32B27/36 008pp

PR - JP19990342868 19991202

XA - C2001-141757

XIC - B32B-027/36 ; C08G-063/183 ; C08G-063/672 ; C08J-005/18

XP - N2001-347406

AB - JP2001158071 NOVELTY - A laminate polyester film consists of polytetramethylene terephthalate group resin layer and polyester ether (PEE) resin layer. PEE resin is formed by polymerizing diol component essentially containing tetramethylene glycol and polytetramethylene oxide glycol and a dicarboxylic acid component essentially containing terephthalic acid or its ester. Ratio of polytetramethylene oxide segment is 5-30 weight%.

- DETAILED DESCRIPTION - An INDEPENDENT CLAIM is also included for packaging bag which has polyester ether resin layer as inner layer and polytetramethylene terephthalate group resin layer as outer layer.

- USE - For packaging bags (claimed) for foodstuffs.

- ADVANTAGE - The laminate polyester film excels in heat resistance, flexibility, shock resistance, pin hole resistance property, transparency, gas barrier property and aroma retention property. The packaging bag has excellent heat sealing property.

- (Dwg.0/0)

IW - LAMINATE POLYESTER FILM PACKAGE BAG COMPRISE LAYER POLYESTER ETHER RESIN FORMING GLYCOL OXIDE GLYCOL TEREPHTHALIC ACID ESTER

IKW - LAMINATE POLYESTER FILM PACKAGE BAG COMPRISE LAYER POLYESTER ETHER RESIN FORMING GLYCOL OXIDE GLYCOL TEREPHTHALIC ACID ESTER

NC - 001

OPD - 1999-12-02

ORD - 2001-06-12

PAW - (MITS-N) MITSUBISHI ENG PLASTICS KK

TI - Laminate polyester film for packaging bag, comprises layer of polyester ether resin formed by polymerizing tetramethylene glycol, polytetramethylene oxide glycol and terephthalic acid, or its ester

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-158071

(P2001-158071A)

(43) 公開日 平成13年6月12日 (2001.6.12)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	FI	テームト* (参考)
B 3 2 B 27/36		B 3 2 B 27/36	4 F 0 7 1
C 0 8 G 63/183		C 0 8 G 63/183	4 F 1 0 0
63/672		63/672	4 J 0 2 9
// C 0 8 J 5/18	CFD	C 0 8 J 5/18	CFD

審査請求 未請求 請求項の数14 OL (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願平11-342868

(22) 出願日 平成11年12月2日 (1999. 12. 2)

(71) 出願人 59413/579

三菱エンジニアリングプラスチックス株式  
会社

東京都中央区京橋一丁目1番1号

(72) 発明者 杉浦 克彦

神奈川県平塚市東八幡5丁目6番2号 三  
菱エンジニアリングプラスチックス株式会  
社技術センター内

(74) 代理人 100103997

弁理士 長谷川 暁司

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 積層ポリエステルフィルム

(57) 【要約】

【目的】 耐熱性、柔軟性と強度のバランス、耐衝撃性、耐ピンホール性、透明性、ガスバリア性、保香性に優れ、且つヒートシール性に優れた積層ポリエステルフィルムを提供する。

【解決手段】 (a) ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂からなる層と (b) ポリエステルエーテル樹脂からなる層とを積層してなる積層ポリエステルフィルムであって、該ポリエステルエーテル樹脂が、テレフタル酸またはそのエステル誘導体を主成分とするジカルボン酸成分とテトラメチレングリコールおよびポリテトラメチレンオキシドグリコールを主成分とするジオール成分を重合してなりポリテトラメチレンオキシドセグメントの割合が5～30重量%である積層ポリエステルフィルム。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (a) ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂からなる層と (b) ポリエステルエーテル樹脂からなる層とを積層してなる積層ポリエステルフィルムであって、該ポリエステルエーテル樹脂が、テレフタル酸またはそのエステル誘導体を主成分とするジカルボン酸成分とテトラメチレングリコールおよびポリテトラメチレンオキシドグリコールを主成分とするジオール成分を重合してなりポリテトラメチレンオキシドセグメントの割合が5〜30重量%であることを特徴とする積層ポリエステルフィルム。

【請求項2】 (a) ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂が、テレフタル酸又はそのエステル誘導体90モル%以上であるジカルボン酸成分とテトラメチレングリコール90モル%以上であるグリコール成分とを縮合してなる重合体であることを特徴とする請求項1に記載の積層ポリエステルフィルム。

【請求項3】 (a) ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂の曲げ弾性率が、ASTM D790規定の1/4"試験片での測定で、2.2〜2.7GPaであることを特徴とする請求項1又は2に記載の積層ポリエステルフィルム。

【請求項4】 (a) ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂の溶液粘度 $[\eta]$ が、テトラクロロエタンとフェノールが重量比50/50を溶媒として30℃での測定で、0.7〜2.0であることを特徴とする請求項1ないし3のいずれかに記載の積層ポリエステルフィルム。

【請求項5】 ポリテトラメチレンオキシドグリコールの数平均分子量が500〜6,000であることを特徴とする請求項1ないし4のいずれかに記載の積層ポリエステルフィルム。

【請求項6】 (b) ポリエステルエーテル樹脂の曲げ弾性率が、ASTM D790規定の1/4"試験片での測定で、0.2〜1.5GPaであることを特徴とする請求項1ないし5のいずれかに記載の積層ポリエステルフィルム。

【請求項7】 (b) ポリエステルエーテル樹脂の溶液粘度 $[\eta]$ が、テトラクロロエタンとフェノールが重量比50/50を溶媒として30℃での測定で、0.7〜2.0であることを特徴とする請求項1ないし6のいずれかに記載の積層ポリエステルフィルム。

【請求項8】 積層ポリエステルフィルムの厚みが、5〜300 $\mu\text{m}$ であることを特徴とする請求項1ないし7のいずれかに記載のポリエステル積層フィルム。

【請求項9】 (a) ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂からなる層厚みと (b) ポリエステルエーテル樹脂からなる層厚みとの比率が90/10〜10/90であることを特徴とする請求項1ないし8のいずれかに記載の積層ポリエステルフィルム。

【請求項10】 (a) ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂からなる層と (b) ポリエステルエーテル系樹脂からなる層とが共押出により形成されていることを特徴とする請求項1〜9のいずれかに記載の積層ポリエステルフィルム。

【請求項11】 積層ポリエステルフィルムが、無配向フィルムであることを特徴とする請求項1ないし10のいずれかに記載のポリエステル積層フィルム。

【請求項12】 積層ポリエステルフィルムが、一軸又は二軸で配向された延伸フィルムであることを特徴とする請求項1ないし10のいずれかに記載のポリエステル積層フィルム。

【請求項13】 請求項1ないし12のいずれかに記載の積層ポリエステルフィルムからなり、外層がポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂層であり、内層がポリエステルエーテル樹脂層であることを特徴とする包装袋。

【請求項14】 ポリエステルエーテル樹脂層がヒートシールされていることを特徴とする請求項13に記載の包装袋。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は積層ポリエステルフィルムに関し、詳しくは異なる複数のポリエステル樹脂を積層してなる積層ポリエステルフィルム及び該積層ポリエステルフィルムからなる包装袋に関する。

【0002】

【従来の技術】ポリエステルフィルムとしては、ポリエチレンテレフタレートフィルム(PETフィルムと略称)が各種用途に使用されてきている。PETフィルムは耐熱性、電気絶縁性、ガスバリア性、保香性等が優れているが、無延伸フィルムは柔軟性が乏しく、破れやすく、ピンホールが発生し易いという欠点がある。こうした欠点を改良するため2軸延伸PETフィルムが、電気絶縁フィルム、写真フィルム、オーディオ、ビデオ等のテープに使用されている。

【0003】しかし2軸延伸PETフィルムは、食品等の包装袋としての用途においては、柔軟性が不十分であり、融点が高くヒートシール性も不十分である。このため2軸延伸PETフィルムはポリエチレン等のシーラントフィルムを接着剤を介して貼り合わせ積層することによりヒートシールを可能にしている。ポリエステルフィルムとしてはPETフィルム以外にポリテトラメチレンテレフタレートフィルム(PBTフィルムと略称)がある。しかしPBTフィルムもPETフィルム同様、柔軟性が不十分でありヒートシール性も必ずしも満足できるものではない。

【0004】柔軟性を改良する方法としては、長鎖脂肪酸ジカルボン酸、長鎖脂肪酸グリコール等の各種柔軟化成分を共重合する方法がある。柔軟性を改良するもうい

とつ方法としては熱可塑性エラストマーのような柔軟材料をブレンドする方法がある。こうしたエラストマーは一般にポリエステル樹脂との相溶性が不十分であり少量の添加で白化し不透明となり、添加の目的が充分達成されないという不具合がある。例えば、ポリエステル系熱可塑性エラストマーは、ソフトセグメント部分の相溶性が乏しく5%程度の少量混合でも相分離が発生して白濁するため透明性の良い柔軟化フィルムを得ることは困難であり、更に、耐熱性、ガスバリア性、保香性が低下しやすい。ヒートシール性の改良する方法としては、融点降下を目的としてテレフタル酸以外の長鎖の脂肪族ジカルボン酸や長鎖脂肪族グリコール等を共重合する方法や接着成分をブレンドする方法などが考えられているが、そうした場合の改良の程度は必ずしも十分ではなかった。

#### 【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、耐熱性、柔軟性と強度のバランス、耐衝撃性、耐ピンホール性、透明性、ガスバリア性、保香性に優れ、且つヒートシール性に優れた積層ポリエステルフィルム及び該積層ポリエステルフィルムからなる包装袋を提供することにある。

#### 【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は上述の問題を解決するためになされたものであり、その要旨は、(a) ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂からなる層と (b) ポリエステルエーテル樹脂からなる層とを積層してなる積層ポリエステルフィルムであって、該ポリエステルエーテル樹脂が、テレフタル酸またはそのエステル誘導体を主成分とするジカルボン酸成分とテトラメチレングリコールおよびポリテトラメチレンオキシドグリコールを主成分とするジオール成分を重合してなりポリテトラメチレンオキシドセグメントの割合が5~30重量%であることを特徴とする積層ポリエステルフィルムに存する。

【0007】以下、本発明につき詳細に説明する。本発明における(a)ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂は、ジカルボン酸の主成分がテレフタル酸又はそのエステル誘導体であり、グリコールの主成分がテトラメチレングリコールであるポリテトラメチレンテレフタレートである熱可塑性ポリエステルである。ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂が共重合体である場合、テレフタル酸以外のジカルボン酸又はそのエステル誘導体及び/又はテトラメチレングリコール以外のグリコールが用いられる。

【0008】テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸としては、イソフタル酸、フタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、ビス(4,4'-カルボキシフェニル)メタン、アントラセンジカルボン酸、4,4'-ジフェニルエーテルジカ

ルボン酸、およびこれらのエステル誘導体等が挙げられる。脂肪族ジカルボン酸としては、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸、ダイマー酸等およびこれらのエステル誘導体等が挙げられる。脂環族ジカルボン酸として、1,4シクロヘキサンジカルボン酸、4,4'-ジシクロヘキシルジカルボン酸およびこれらのエステル誘導体等が挙げられる。

【0009】テトラメチレングリコール以外のグリコールとしては、エチレングリコール、トリメチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、ネオペンチルグリコール、デカメチレングリコール、1,4-シクロヘキサジメタノール、4,4'-ジシクロヘキシルヒドロキシメタン、4,4'-ジシクロヘキシルヒドロキシプロパン、ビスフェノールAエチレンオキシド付加ジオール、ポリエチレンオキシドグリコール、ポリプロピレンオキシドグリコール等が挙げられる。また、グリセリン、トリメチロールプロパン等のトリオールなども用いることもできる。

【0010】ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂としては、好ましくは、テレフタル酸又はそのエステル誘導体90モル%以上であるジカルボン酸成分とテトラメチレングリコール90モル%以上であるグリコール成分とを縮合してなる重合体が挙げられ、より好ましくはテレフタル酸又はジメチルテレフタレートとテトラメチレングリコールとを縮合して得られるポリテトラメチレンテレフタレート(PBT)が挙げられる。

【0011】ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂の曲げ弾性率は、ASTM D790規定の1/4"試験片での測定で、好ましくは2.2~2.7GPaであり、より好ましくは2.3~2.6GPaである。曲げ弾性率が2.2GPa未満であると結晶性が不十分であり、2.7GPaを越えると引張伸度が不十分である。

【0012】ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂の溶液粘度 $[\eta]$ は、テトラクロロエタンとフェノールが重量比50/50を溶媒として30℃での測定で、好ましくは0.7~2.0であり、より好ましくは0.9~1.6である。ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂の溶液粘度が低すぎるとフィルム製膜がしにくかつフィルムの靱性が不十分であり、高すぎるとフィルム製膜性が損なわれる。

【0013】ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂がPBTである場合、PBTの融点は、DSC法昇温速度20℃/minで測定したときの融解ピーク温度であり、好ましくは222~227℃である。ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂がポリテトラメチレンテレフタレート共重合体である場合、ポリテトラメチレンテレフタレート共重合体の融点は、DSC法昇温速度20℃/minで測定したときの融解ピーク温度で、好ましくは220~230℃である。

【0014】本発明における(b)ポリエステルエーテル樹脂は、テレフタル酸またはそのエステル誘導体を主成分とするジカルボン酸成分とテトラメチレングリコールおよびポリテトラメチレンオキシドグリコールを主成分とするジオール成分を重合してなるポリエステルエーテル樹脂であり、ポリテトラメチレンオキシドセグメントの割合は5～30重量%である。ポリテトラメチレンオキシドセグメントの割合が5重量%未満であると柔軟化効果が不十分であり、30重量%を越えると強度、ガス透過度、透明性が不十分である。ポリテトラメチレンオキシドセグメントの割合は好ましくは8～28重量%であり、より好ましくは10～25重量%である。

【0015】ポリテトラメチレンオキシドグリコールの数平均分子量は、好ましくは300～6,000であり、より好ましくは500～4,000である。数平均分子量が小さすぎると柔軟化効果が不十分になりやすく、大きすぎると強度、耐熱性、透明性が不十分になりやすい。

【0016】ポリテトラメチレンオキシドグリコールの数平均分子量は、末端基の水酸基を過剰の無水酢酸又は無水フタル酸と反応させ残余の無水酢酸又は無水フタル酸を水で分解して酸とし、この酸をアルカリ滴定で定量することによって、ポリテトラメチレンオキシドグリコールの末端水酸基に消費された無水酢酸又は無水フタル酸の量を求めることによって測定することができる。

【0017】ポリエステルエーテル樹脂の曲げ弾性率は、ASTM D790規定の1/4"試験片での測定で、好ましくは0.2～1.5GPaであり、より好ましくは0.3～1.0GPaである。曲げ弾性率が0.2GPa未満であると強度が不十分であり、1.5GPaを越えると柔軟性付与効果が不十分である。

【0018】ポリエステルエーテル樹脂の溶液粘度〔 $\eta$ 〕は、テトラクロロエタンとフェノールが重量比50/50を溶媒として30℃での測定で、好ましくは0.7～2.0であり、より好ましくは0.9～1.6である。ポリエステルエーテル樹脂の溶液粘度が低すぎたり高すぎるとフィルム製膜性が損なわれる。ポリエステルエーテル樹脂の融点は200～225℃であり、より好ましくは210～222℃である。

【0019】ポリエステルエーテル樹脂としては、テレフタル酸またはそのエステル誘導体以外のジカルボン酸成分及び/又はテトラメチレングリコールおよびポリテトラメチレンオキシドグリコール以外のジオール成分を用いて共重合したポリエステルエーテル樹脂であってもよい。

【0020】テレフタル酸またはそのエステル誘導体以外のジカルボン酸成分としては、イソフタル酸、フタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、ビス(4,4'-カルボキシフェニル)メタン、アントラセンジカルボン酸、4,4'-ジ

フェニルエーテルジカルボン酸等の芳香族ジカルボン酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、4,4'-ジシクロヘキシルジカルボン酸等の脂環族ジカルボン酸、およびアジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸、ダイマー酸等の脂肪族ジカルボン酸若しくはそのエステル誘導体からなる成分などが挙げられる。機械的性質やガス透過性や耐熱性の点から、芳香族ジカルボン酸の割合は、全ジカルボン酸中好ましくは70モル%以上であり、より好ましくはテレフタル酸が全ジカルボン酸中70モル%以上である。

【0021】テトラメチレングリコール及びポリテトラメチレンオキシドグリコール以外のグリコール成分としては、炭素数2～20の脂肪族ジオール、脂環族ジオール、ビスフェノール誘導体などが挙げられる。テトラメチレングリコールおよびポリテトラメチレンオキシドグリコール以外のグリコール成分の具体例としては、エチレングリコール、トリメチレングリコール、プロピレングリコール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、ネオペンチルグリコール、デカメチレングリコール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、4,4'-ジシクロヘキシルヒドロキシメタン、4,4'-ジシクロヘキシルヒドロキシプロパン、ビスフェノールAエチレンオキシド付加ジオール、ポリエチレンオキシドグリコール、ポリプロピレンオキシドグリコール等およびこれらの混合系が挙げられる。さらに、グリセリン、トリメチロールプロパン等のトリオールなども使用できる。

【0022】本発明におけるポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂およびポリエステルエーテル樹脂は、従来から知られている重縮合法により製造することができる。ポリテトラメチレンテレフタレート樹脂の製造方法としては、例えば、テレフタル酸ジメチルエステルにテトラメチレングリコールを所定量の割合で混合して、錫、チタン、亜鉛、マンガン、ゲルマニウム等のアルコール、塩化物または酸化物のような触媒存在下、約150～250℃で加熱反応させ、エステル交換反応でメタノールを留出させる。ついで10mmHg以下の減圧度にて、200～280℃で加熱重縮合させポリテトラメチレンテレフタレートを得、カッティングすることでそのベレットを得ることができる。この重合反応から抜き出しの任意の工程で熱安定剤等を添加することもできる。

【0023】ポリエステルエーテル樹脂の製造方法としては、例えば、テレフタル酸ジメチルエステルにテトラメチレングリコールおよびポリテトラメチレンオキシドグリコールを所定量の割合で添加して、錫、チタン、亜鉛、マンガン、ゲルマニウム等のアルコール、塩化物または酸化物のような触媒存在下、約150～250℃で加熱反応させ、エステル交換反応でメタノールを留出させる。ついで10mmHg以下の減圧度にて、200

～280℃で加熱重縮合させポリエステルエーテルを得、カッティングすることでそのペレットを得ることができる。

【0024】ポリエステルエーテル樹脂を得る際、ポリテトラメチレンオキシドグリコールを先に加えてエステル交換の後テトラメチレングリコールを添加し引き続きエステル交換し更に重縮合することによりブロック性をたかめた樹脂とすることもできる。またテレフタル酸とテトラメチレングリコール、ポリテトラメチレンオキシドグリコールを直接重縮合することもできる。

【0025】さらに、熔融重縮合して得られたポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂ペレットやポリエステルエーテル樹脂ペレットを不活性ガス気流下、融点以下170～210℃の高温で加熱処理したり、加熱減圧処理する、いわゆる固相重合法によりさらに分子量を高めることもできる。

【0026】ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂およびポリエステルエーテル樹脂は、成形に先立ち、滑剤、潤滑剤、アンチブロッキング材、熱安定剤、酸化安定剤、光安定剤、紫外線吸収剤、充填剤等各種助剤を必要に応じて添加することができる。その添加の形態は直添、マスターバッチ添加、練り混み添加等の方法で行うことができる。

【0027】アンチブロッキング材としては、微粉シリカ、微粉カオリン、微粉炭酸カルシウム等の無機微粒子、架橋ポリメタクリル酸メチル、架橋ポリスチレンのような有機球状微粒子などが挙げられ、それらの粒径は0.1～10 $\mu$ m程度である。

【0028】滑剤、潤滑剤としては、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸マグネシウム等の滑剤、長鎖脂肪酸エステル類や長鎖有機酸塩類などが挙げられ、熱安定剤、酸化安定剤としては、ヒンダートフェノール系酸化防止剤、チオエーテル系熱安定剤、フォスファイト系熱安定剤などが挙げられ、光安定剤、紫外線吸収剤としては、ヒンダートアミン系光安定剤、トリアジン系紫外線吸収剤、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤などが挙げられる。滑剤、潤滑剤、アンチブロッキング材、熱安定剤、酸化安定剤、光安定剤、紫外線吸収剤などの添加量は、それぞれ、樹脂に対して0.01～10重量%程度であるが、この値に制約されるものではない。フィルム外觀、衛生上、リサイクルの観点からは少ない方が好ましい。

【0029】本発明の積層ポリエステルフィルムは、ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂からなる層とポリエステルエーテル樹脂からなる層とを積層してなる複数層の積層フィルムであり、好ましくは2層の積層フィルムである。3以上の層からなる積層フィルムの場合、例えば、ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂からなる層とポリエステルエーテル樹脂からなる層の間に中間層を設けることもできるし、ポリテトラメチレンテレ

フタレート系樹脂からなる層の片側にポリエステルエーテル樹脂からなる層をもう一方の側に別の層を設けることもできる。

【0030】積層ポリエステルフィルムは、無配向フィルム、一軸配向延伸フィルムまたは二軸配向延伸フィルムであることが好ましい。ポリエステル積層フィルムの厚みは、好ましくは5～300 $\mu$ mであり、より好ましくは10～200 $\mu$ mであり、最も好ましくは20～100 $\mu$ mである。ポリエステル積層フィルムの厚みが5 $\mu$ m以下であると強度やガスバリア性が不十分となりやすく、300 $\mu$ mを越えると柔軟性や透明性が不十分になりやすい。

【0031】積層ポリエステルフィルムにおいて、ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂からなる層厚みとポリエステルエーテル樹脂からなる層厚みとの比率は、好ましくは90/10～10/90であり、より好ましくは80/20～20/80である。ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂からなる層厚みが小さすぎるとガスバリア性が不十分であり、大きすぎると柔軟性が不十分である。

【0032】積層ポリエステルフィルムが無延伸である場合、厚さ25 $\mu$ mのフィルムで測定した値で、フィルム引張強度は50～100MPa程度であり、ヤング率は0.5～2GPa程度である。積層ポリエステルフィルムが延伸フィルムである場合、厚さ15 $\mu$ mのフィルムで測定した値で、延伸方向の強度は延伸倍率にもよるが60～300MPa程度であり、ヤング率は1～3GPa程度である。

【0033】本発明の積層ポリエステルフィルムの製造方法としては、Tダイ製膜機やインフレーション製膜機を用い、共押出法にて製膜する方法が好ましい。Tダイ法により製造する場合、シリンダー温度220～260℃で押出し、5～90℃のロールでフィルム化する。フィルムの透明性が必需なときには冷却キャストロール温度を低くする。透明性の不必要な用途向けにはキャストロール温度を高くしてもよい。引き続きロール縦延伸またはテンター横延伸等で1軸延伸フィルムをまた縦延伸後横延伸して2軸延伸フィルムが得られる。延伸後、180～210℃程度の温度で熱セットするのが好ましい。

【0034】インフレーション法により製造する場合には、前記同様のシリンダー温度設定で2層円形ダイ中で熔融樹脂を合流させ押し出し、空冷もしくは水冷法により、ブローアップ比0.7～1.7程度でブローアップした後に冷却してフィルムを巻き取る。水冷により急冷することにより透明度の高い積層フィルムが得られる。

【0035】本発明の包装袋は、積層ポリエステルフィルムからなり、外層がポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂であり、内層がポリエステルエーテル樹脂である。本発明の包装袋は、積層ポリエステルフィルム、好



ましくはポリエステルエーテル樹脂からなる層をヒートシールすることにより容易にシールをすることができ、る。

#### 【0036】

【実施例】以下、本発明を実施例により更に詳細に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。実施例および比較例における評価方法は次のとおりである。

(1) 引張り強度および引張り伸度の測定：フィルムから15mm幅に機械方向に長さ100mmの試験片を切り出し、ASTM D-882に従って、23℃下チャック間50mmで、200mm/minの引張り速度で測定した。

【0037】(2) ヤング率の測定：引張強度および引張伸度の測定におけると同様な試験片で23℃下チャック間200mmで、4mm/minの引張り速度で測定し、2%伸び率の強度から算出した。

(3) フィルム衝撃強度の測定：フィルムインパクトテスター（オリエンテック社IFT60型）により23℃、55%RHにおけるフィルム衝撃強度を測定した。

【0038】(4) ヒートシール強度および破断伸度の測定：幅200mm長さ200mmのフィルムを切り出し、2枚重ね合わせ端部より約20mmの位置を幅300mm、シール幅10mmの熱板ヒートシーラーで、210℃、圧力20MPa (2kg/cm<sup>2</sup>) で1秒シールした。ヒートシール試料のシールラインに直角に幅15mmとなるように試験片を切り出し、引張り速度50mm/minでT型剥離強度を測定してヒートシール強度を求めた。またこの試験における破壊様式を観察し、以下の表示とした。○：シール強度大でフィルム破断、△：シール部の剥離、×：シール端部の破断

【0039】(5) ヘイズの測定：60×60mmの試験片を引き取り幅方向に4ヶ所切り出し、ヘイズメーターでヘイズを測定し、平均値を求めた。

(6) 酸素透過度の測定：透過面積4.7cm<sup>2</sup>のフィルムにより、JIS K7126等圧法で、23℃下の酸素透過度を測定した。

【0040】実施例および比較例における使用樹脂は以下である。

(a) ポリテトラメチレンテレフタレート系樹脂：テレフタル酸ジメチルとテトラメチレングリコールとを用いて重合して得られた〔η〕1.2、融点225℃、曲げ弾性率2.42GPaのポリテトラメチレンテレフタレート（以下PBT-1と称する。）

【0041】(b) ポリエステルエーテル樹脂：テレフタル酸ジメチルとテトラメチレングリコール、数平均分子量1000のポリテトラメチレンオキシドグリコールを用いて共重合して得られた、ポリテトラメチレンオキシドセグメント含有量が10wt%であり〔η〕1.15、融点222℃、曲げ弾性率0.72GPaのポリ

エステルエーテル樹脂（以下、PEE-1と称する。）

【0042】(c) ポリエステルエーテル樹脂：テレフタル酸ジメチルとテトラメチレングリコール、数平均分子量1000のポリテトラメチレンオキシドセグメント含有量が20重量%で〔η〕1.30、融点216℃、曲げ弾性率0.37GPaのポリエステルエーテル樹脂（以下、PEE-2と称する。）

【0043】〔実施例1〕PBT-1およびPEE-1を120℃で8時間乾燥後、直径40mm、L/D=22の押出機を用い、PBT-1はシリンダー温度270℃、PEE-1はシリンダー温度250℃で押出し2層Tダイ温度250℃、キャストイングロール温度25℃でキャスト面側をPEE-1とした厚さ50μmの積層フィルムを得た。厚み比率はPBT-1を30%、PEE-1を70%とした。この実質的に分子配向していない積層フィルムを用いて各種評価を行った。評価結果を表-1に示した。ヒートシールはPEE-1側でおこなった。ヒートシール強度測定時の破壊様式はヒートシール部以外でのフィルム破断であり良好なシール強度を示した。

【0044】〔実施例2〕PBT-1およびPEE-2を120℃で8時間乾燥後、直径40mm、L/D=22の押出機を用い、PBT-1はシリンダー温度260℃、PEE-1はシリンダー温度240℃で押出し2層Tダイ温度240℃、キャストイングロール温度25℃でキャスト面側をPEE-2とした厚さ50μmの積層フィルムを得た。厚み比率はPBT-1からなる層を30%、PEE-2からなる層が70%であった。この実質的に分子配向していない積層フィルムを用いて各種評価を行った。評価結果を表-1に示した。ヒートシールはPEE-2側でおこなった。ヒートシール強度測定時の破壊様式はヒートシール部以外でのフィルム破断であり良好なシール強度を示した。

【0045】〔実施例3〕厚み比率をPBT-1からなる層を50%、PEE-2からなる層を50%とした以外は実施例2と同様にして、厚さ50μmの積層フィルムを得た。ヒートシールはPEE-2側でおこなった。ヒートシール強度測定時の破壊様式はヒートシール部以外でのフィルム破断であり良好なシール強度を示した。

〔実施例4〕厚み比率をPBT-1からなる層を50%、PEE-2からなる層を50%とした以外は実施例2と同様にして、2層Tダイで、厚み135μmの積層フィルムを製膜した。このフィルムを用い、延伸機にて60℃雰囲気下倍率3倍で同時2軸延伸し、次いで200℃で1分ヒートセットし、厚み15μmの2軸延伸積層フィルムを得た。得られたフィルムにつき、各種評価を行った。評価結果を表-1に示す。ヒートシール強度測定時の破壊様式はヒートシール部以外でのフィルム破断であり良好なシール強度を示した。

【0046】〔比較例1〕PBT-1を乾燥後単層Tダイ押し出し機を用いて、実施例1と同様な条件で製膜し50 $\mu$ mのフィルムを得た。この実質的に分子配向していない単層フィルムを用いて各種評価を行った。評価結果を表-1に示した。ヒートシール強度の評価においては強度が不十分であったので、シール時間を4秒にし測定した。ヒートシール強度測定時の破壊様式はヒートシール部で界面破壊するケースとシール端部での脆性的フィルム破断のケースが混合しており、シールの安定性がやや不良であった。

【0047】〔比較例2〕PEE-2を用いて単層Tダイ押し出し機にて実施例1と同様な条件で製膜し50 $\mu$ mのフィルムを得た。この実質的に分子配向していない単層フィルムを用いて各種評価を行った。結果を表-1に示した。ヒートシール強度測定時の破壊様式は非ヒートシール部での延性的フィルム破断であった。

【0048】〔比較例3〕溶液粘度0.65のポリエチレンテレフタレート（PET）を用い、シリンダー温度280℃、Tダイ温度265℃、キャストロール温度25℃で単層50 $\mu$ mの実質的に無配向のフィルムを得た。このフィルムを用いて各種評価を行った。ヒートシール試験においてはフィルムが熔融融着破断したので、ヒートシールバー温度を徐々に下げていき100℃でフィルム溶融が回避されヒートシールが行え、強度試験に供したところ強度は30g/15mm～1700g/15mmにばらつき、シール面の界面剥離とシール面でのフィルム破断が混合していた。シールバー温度95℃では30g/15mm程度の強度でシール面の界面剥離であり充分な強度が得られなかった。

【0049】

【表1】

表-1

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2
フィルムの種類	縦型配向	縦型配向	縦型配向	縦型2軸延伸	縦型配向	縦型配向
フィルム厚み	50	50	50	15	50	50
PBT層	PBT-1	PBT-1	PBT-1	PBT-1	PBT-1	
ポリエチレンテレフタレート層	PEE-1	PEE-2	PEE-2	PEE-2		PEE-2
PBT層/ポリエチレンテレフタレート層	30/70	30/70	50/50	50/50		
引張り強度 (MPa)	77.4	74.4	70.6	152	82.3	7.3
引張り伸び (%)	530	550	560	150	510	600
ヤング率 (GPa)	1.55	1.22	1.13	1.57	1.57	0.34
フィルム衝撃強度 (J)	84.3	88.2	92.1	69.6	83.3	108
ヒートシール強度 (N/15mm)	15.1	14.9	10.1	14.5	7.4	17.3
シール破壊状態	○	○	○	○	×	○
ヘイズ (%)	0.8	1.1	0.8	0.6	0.1	1.5
酸素透過度 ( $\times 10^{-12}$ mol/m <sup>2</sup> ·s·Pa)	0.64	1.63	1.25	2.09	0.32	2.18

【0050】

【発明の効果】本発明の積層ポリエステルフィルムは、耐熱性、柔軟性と強度のバランス、耐衝撃性、耐ピンホール性、透明性、ガスバリア性、保香性に優れており、

且つヒートシール性にも優れており、食品用途等の包装用として非常に有用である。本発明の包装袋は、ヒートシール性に優れておりシールを容易に且つ確実に行うことができ各種品目の包装袋として非常に有用である。

フロントページの続き

(72)発明者 若林 信克

神奈川県平塚市東八幡5丁目6番2号 三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社技術センター内



Fターム(参考) 4F071 AA45 AA47 AA88 AF17Y  
AH04 BA01 BB06 BB08 BC01  
BC12  
4F100 AK41B AK41J AK42A AK54B  
AK54J AL01B AL06A BA02  
BA15 EH20 EJ37A GB15  
JA06B JA07B JA20A JC00  
JD02 JJ03 JK04A JK04B  
JK07 JK10 JK13 JK14 JL12  
JL13B JN01 YY00 YY00A  
YY00B  
4J029 AA03 AB05 AB07 AC01 AC02  
AD01 AD06 AD10 AE03 BA02  
BA03 BA04 BA05 BA08 BA10  
BD07A BD10 BF09 BF25  
BF26 CA02 CA06 CB05A  
CB06A CB10A CC04A CC05A  
CC06A CD03 CD07 CF08  
FC03 FC05 GA22 HA01 HB01  
HB03A JA061 JA091 JB131  
JE182 JF181 JF321 JF361  
JF371 JF541 KB02 KD01  
KD07 KE02 KH08